



新闻动态

科技新闻

通知公告

支部活动

学习园地

信息公开

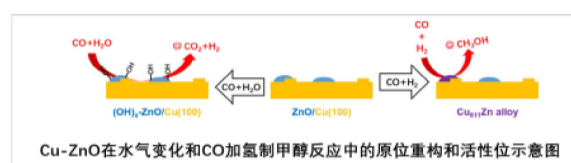
科技新闻

当前位置: 首页 | 新闻动态 | 科技新闻

中国科大确定了水气变换和CO加氢制甲醇反应Cu-ZnO催化剂的活性位

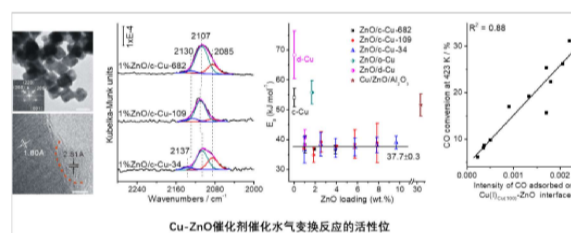
来源: 科研部 发布时间: 2021-07-22 浏览次数: 123

近日, 中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家研究中心/化学与材料科学学院黄伟新教授、张文华副教授和厦门大学王野教授合作研究了具有明确Cu结构的ZnO/Cu催化剂催化水气变换和CO加氢制甲醇反应, 观察到Cu结构和反应气氛依赖的催化剂原位重构现象, 确定了Cu_{Cu(100)}-羟基化ZnO界面和Cu_{Cu(611)}Zn合金分别是Cu-ZnO催化剂催化WGS反应和CO加氢制甲醇反应的活性位。研究成果于7月15日以“The active sites of Cu-ZnO catalysts for water gas shift and CO hydrogenation reactions”为题发表在Nat. Commun.**2021**, 12, 4331。

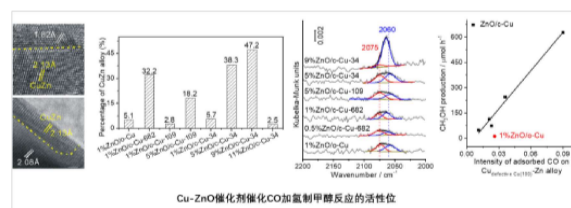


自“活性位”概念的提出, 辨别催化剂活性位结构成为多相催化反应的“Holy Grail”。催化剂的活性位结构依赖于所催化的化学反应, 广泛应用于商业水煤气变换 (WGS, $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$) 和CO加氢制甲醇 ($\text{CO} + 2\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_3\text{OH}$) 反应的Cu-ZnO-Al₂O₃催化剂是典型代表。因此, Cu-ZnO-Al₂O₃催化剂在WGS和CO加氢制甲醇反应中的催化活性位结构被广泛研究, 但由于缺乏明确实验证据, 仍然存在较大争议。黄伟新教授提出“纳米晶模型催化剂”概念开展工业催化反应条件下的催化表面化学研究, 确定催化剂活性位和理解催化作用机制 (Acc. Chem. Res. 49 (2016) 520; Surf. Sci. Rep. 74 (2019) 100471), 并基于结构规整Cu₂O/Cu纳米晶在铜基催化体系取得系列进展 (Angew. Chem. Int. Ed. 50 (2011) 12294/126 (2014) 4956/58 (2019) 4276; Nat. Commun. 8 (2017) 488)。本工作中, 以结构规整ZnO/Cu₂O催化剂为前驱体, 通过形貌维持的还原方法制备了结构规整ZnO/Cu催化剂, 综合原位表征技术, 结合理论计算, 系统研究了ZnO/Cu催化剂在水气变换和CO加氢制甲醇反应中的催化行为。

在水气变化反应中, 观察到ZnO/c-Cu_{Cu(100)}催化剂表现出最高的催化活性, 其催化性能与Cu(I)Cu₍₁₀₀₎-ZnO界面位点数目正相关。结合理论计算, 确定了Cu_{Cu(100)}-羟基化ZnO界面结构是催化活性位。



在CO加氢制甲醇反应中, 观察到CuZn合金的原位形成, CuZn合金形成与Cu表面缺陷位点数目正相关, 在c-Cu_{Cu(100)}表面缺陷位点(Cu(611))最容易形成。ZnO/c-Cu_{Cu(100)}催化剂催化甲醇生成速率与CuZn合金位点数目正相关。结合理论计算, 确定了Cu_{Cu(611)}Zn合金是催化活性位。



文章第一作者是中国科学技术大学已毕业博士研究生张振华 (目前在浙江师范大学工作), 共同第一作者是博士研究生陈玄烨和厦门大学康金灿博士。该项研究得到了国家自然科学基金委员会、科技部、中国科学院、教育部、安徽省等的支持。

论文链接: <https://www.nature.com/articles/s41467-021-24621-8>

(合肥微尺度物质科学国家研究中心、化学与材料科学学院、科研部)

